

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-031355  
(43)Date of publication of application : 04.02.1997

---

(51)Int.CI. C09C 1/28  
C09C 1/24  
C09C 3/06

---

(21)Application number : 08-180986 (71)Applicant : BASF AG  
(22)Date of filing : 10.07.1996 (72)Inventor : SCHMID RAIMUND  
MRONGA NORBERT DR

---

(30)Priority  
Priority number : 95 19525503 Priority date : 13.07.1995 Priority country : DE

---

## (54) GONIOCHROMATIC LUSTROUS PIGMENT

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To obtain a goniochromatic lustrous pigment which is based on a nonmetallic flaky substrate transparent at least partly to visible rays.

**SOLUTION:** This pigment is based on a multicoated nonmetallic flaky substrate having a high refractive index and transparent at least partly to visible rays and comprises at least one layer packet comprising a colorless coating film having a refractive index (n) of 1.8 or lower, a reflecting and selectively or nonselectively absorbing coating film transparent at least partly to visible rays, and if necessary an outer protective layer.

---

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 01.04.2003

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3691910

[Date of registration] 24.06.2005

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平9-31355

(43)公開日 平成9年(1997)2月4日

(51)Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 9 C 1/28	P A P		C 0 9 C 1/28	P A P
1/24	P A M		1/24	P A M
3/06	P B T		3/06	P B T

審査請求 未請求 請求項の数1 O L (全9頁)

(21)出願番号	特願平8-180986	(71)出願人	590001212 ピーエーエスエフ アクチングゼルシャ フト ドイツ連邦共和国 ルートヴィッヒスハ フェン カール-ボッシュストラーゼ 38
(22)出願日	平成8年(1996)7月10日	(72)発明者	ライムント シュミト ドイツ連邦共和国 ノイシュタット イム ファルケンホルスト 1
(31)優先権主張番号	1 9 5 2 5 5 0 3. 8	(72)発明者	ノルベルト ムロンガ ドイツ連邦共和国 ドッセンハイム リン グシュトラーゼ 2
(32)優先日	1995年7月13日	(74)代理人	弁理士 矢野 敏雄 (外2名)
(33)優先権主張国	ドイツ (DE)		

(54)【発明の名称】 ゴニオクロマチック光沢顔料

(57)【要約】

【課題】 透明な、非金属板片状基体をベースとするゴニオクロマチック光沢顔料を提供する。

【解決手段】 前記顔料は、少なくとも一部分可視光線に対して透明である、多層被覆した、高い屈折率の、非金属板片状基体をベースとし、

A) 1.8以下の屈折率nを有する無色の被膜および  
B) 少なくとも一部分可視光線に対して透明である反射性の、選択的または非選択的に吸収する被膜および場合により更に

C) 外側の保護層  
からなる少なくとも1つの層パケットから構成される。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも一部分可視光線に対して透明である、多層被覆した、高い屈折率の、非金属板片状基体をベースとするゴニオクロマチック光沢顔料において、前記顔料が

A) 1.8以下の屈折率nを有する無色の被膜および  
B) 少なくとも一部分可視光線に対して透明である反射性の、選択的または非選択的に吸収する被膜および場合により更に

C) 外側の保護層

からなる少なくとも1つの層パケットから構成されることを特徴とする、ゴニオクロマチック光沢顔料。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

## 【発明の属する技術分野】 本発明は、

A) 1.8以下の屈折率nを有する無色の被膜および  
B) 少なくとも一部分可視光線に対して透明である反射性の、選択的または非選択的に吸収する被膜および場合により更に

C) 外側の保護層

からなる少なくとも1つの層パケットから構成される、少なくとも一部分可視光線に対して透明である、多層被覆した、高い屈折率の、非金属板片状基体をベースとする新規のゴニオクロマチック(goniochromatic)光沢顔料、ならびにペイント、印刷インクを含むインク、プラスチック、ガラス、セラミック製品および装飾化粧品調製物を着色するためのその使用に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 光沢効果顔料は産業の多くの分野で、例えば自動車被膜、装飾被膜、プラスチック着色、ペイント、印刷インク、特に有価証券用印刷インクおよび化粧品に使用されている。

【0003】 その光学的効果は主にシート状の、互いに平行に配向された、金属性または屈折率の大きい顔料粒子における光の配向された反射にもとづく。顔料板片の組成、干渉、反射および吸収現象に依存して、角度に依存した色および明るさの効果が生じる。

【0004】 その複写不可能な光学的効果により、これらの顔料は偽造を防ぐ有価証券、例えば銀行券、チェック、チェックカード、クレジットカード、印紙、郵便切手、乗車券、航空券、テレホンカード、くじ券、商品券、定期券および身分証明書の製造にますます重要になっている。

【0005】 光沢効果顔料で製造されたマークおよびこのマークがないことまたは例えばカラーコピーでのその変造(カラーフロップおよび光沢効果の消失)は、肉眼、裸眼により確実に認識でき、コピーと本物を簡単に区別できる。

【0006】 複数の強い干渉色の間で角度に依存した色の変化を示し、その色の動きのために特に重要であるゴ

ニオクロマチック光沢顔料はこれまで多層被覆した、板片状の金属基体をベースとするもののみが知られている。

【0007】 米国特許第3438796号明細書および第5135812号明細書には、例えば絶縁性の反射率の低い被膜(二酸化珪素、フッ化マグネシウム)および透明な金属被膜(アルミニウム、クロム)で両面に交互に被覆された、中心が不透明のアルミニウム被膜からなる金属光沢顔料が記載されている。その付加的なきわめて複雑化した製造(高真空中で基体フィルムに種々の被膜物質を交互に真空蒸着し、真空蒸着した多層被膜からフィルムを除去し、これを顔料粒子大きさに粉碎する)のために、前記顔料の中心の金属被膜は板片の頭部および底部表面にしか被覆できない。

【0008】 先願のドイツ特許出願番号P.4405492号およびP.4437753号、19516181.5号、19515988.8号には、CVD(Chemical Vapor Deposition、化学的真空蒸着)法によりまたは湿式化学的に屈折率の低い金属酸化物層(特に $SiO_2$ )

20 および非選択的に吸収する金属層、金属酸化物層および/または金属硫化物層または選択的に吸収する高い屈折率の金属酸化物層で金属板片(特にアルミニウム板片)を被覆することにより製造されるゴニオクロマチック光沢顔料が記載されている。

【0009】 金属をベースとする光沢顔料は確かにすぐれた隠蔽力を含めた良好な適用特性を有するが、ワニスへの使用は、例えばざらざらした金属光沢を生じ、これは常に好ましいわけではない。

【0010】 このざらざらした金属光沢を示さない透明30 板片状の基体をベースとする光沢顔料は、例えば国際特許WO-A-93/12182号明細書に記載されており、これは高い屈折率の金属酸化物層(特に二酸化チタン)および非選択的に吸収する層で被覆された雲母の板片に関する。これらの顔料は平面でみると $TiO_2$ 層厚さに依存して一定の干渉色を示し、これが見る角度を傾斜していくとだんだんと弱くなり、最終的に灰色または黒色になる。これは実際には干渉色の色調の変化の結果ではなく、色の強度(彩度)の減少の結果にすぎない。

【0011】 水ガラス溶液を基体テープに塗布し、ゲル40 化し、乾燥し、分離し、塩で洗浄し、粉碎することにより高価で製造される二酸化珪素板片状光沢顔料、 $SiO_2$ 被膜は国際特許WO-A-93/8237号明細書から公知である。 $SiO_2$ 被膜を有機または無機顔料で着色し、着色剤を添加した $SiO_2$ 板片に $SiO_2$ を含有する二酸化チタンを被覆することにより角度に依存して干渉色または顔料の体質色を示す顔料が得られる。

【0012】 最後に特開平4-93206号公報には不透明の金属層および交互に $SiO_2$ 層および $TiO_2$ 層を被覆したガラス薄片をベースとする光沢顔料が記載されており、この光沢顔料はメタリック光沢顔料に類似し

ている。

【0013】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、有利な適用特性を有し、経済的なやり方で製造することができるほかのゴニオクロマチック光沢顔料を提供することであった。

【0014】

【課題を解決するための手段】前記課題は、冒頭に記載のゴニオクロマチック光沢顔料により解決され、この顔料は被膜、印刷インクを含めたインク、プラスチック、ガラス、セラミック製品および装飾化粧品調製物を着色するのに有利である。

【0015】本発明によるゴニオクロマチック光沢顔料は少なくとも一部分可視光線に対して透明である高い屈折率の、非金属性、板片状基体に対してすぐれている。

【0016】本発明の目的に関して、“少なくとも一部分可視光線に対して透明”とは基体が一般に入射光を少なくとも10%、有利には少なくとも30%透過することである。

【0017】適当な基体物質は本質的に高い屈折率であり、すなわち一般に2以上、有利には2.4以上の屈折率を有するかまたは本質的に低い屈折率しかないが、高い屈折率の光透過性被膜を施した(半)透明の物質である。

【0018】特に適当な本質的に高い屈折率の物質の例は、特に板片状の酸化鉄、有利には珪素をドープした板片状の酸化鉄(III)、 $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (欧州特許公開第14382号明細書)、アルミニウムをドープした板片状の酸化鉄(III) (欧州特許公開第68311号明細書)またはアルミニウムおよびマンガンをドープした板片状の酸化鉄(III) (欧州特許第265820号明細書)および板片状のオキシ塩化ビスマスBiOC1 (欧州特許公開第315849号明細書)である。板片状の二酸化チタンおよび二酸化ジルコニウムを使用することは原則的に可能であるが、これらの物質は製造に経費がかかる(米国特許第4168986号明細書)。

【0019】高い屈折率の物質を施した特に適当な本質的に低い屈折率の物質の例は、特に高い屈折率の金属酸化物層を施した珪酸塩の板片である。珪酸塩の板片は特に淡い色のまたは白い雲母であり、有利に湿式粉碎した白雲母の薄片が特に有利である。もちろんほかの天然の雲母、例えば金雲母および黒雲母、人工雲母、タルクおよびガラス薄片を使用することも可能である。

【0020】珪酸塩板片の金属酸化物被膜は無色の高い屈折率の金属酸化物、例えば酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化亜鉛および酸化スズ、およびオキシ塩化ビスマスおよび吸収する高い屈折率の金属酸化物、例えば酸化鉄および酸化クロム、イルメナイトまたはこれらの酸化物のほかの混合物から構成することができる。少量であれば酸化アルミニウムおよび酸化珪素が同様に存在し

てもよい。

【0021】特に有利な基体物質は主に二酸化チタンからなり、少量の(一般に5重量%未満)ほかの、有利には無色の金属酸化物のみを含有する酸化物被膜からなる雲母板片である。この顔料は周知であり、商標名Iridin(R)(Merck,Darmstadt), Flonac(R)(Kemira Oy,Pori)またはMearlin(R)(Mearl Corporation,New York)で市販されている。

【0022】TiO<sub>2</sub>層の厚さ(幾何学的層厚さ)は通常10~300nm、有利には20~200nmである。特に有利には基体として薄いTiO<sub>2</sub>被膜(約20~40nm)のみを有する雲母顔料を使用することも可能である。

【0023】TiO<sub>2</sub>被膜が一部分還元され、未変化のTiO<sub>2</sub>と同様に4未満から2までの酸化状態を有する還元したチタン種類(低級酸化物、例えばTi<sub>3</sub>O<sub>5</sub>、TiOをへたTi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、オキシ窒化チタンおよび窒化チタン)を含有するチタニア被覆した雲母顔料が基体物質として使用するために特に有利である。還元した顔料は未還元のTiO<sub>2</sub>被覆した顔料より色が強烈であり、還元の程度が高まるとともにその体質色がチタンの還元生成物の吸収色の方向に、すなわち青から紫の色調範囲に移動する。その製造は周知のようにアンモニア、水素、炭化水素および炭化水素/アンモニア混合物で還元することにより行うことができ(欧州特許公開第332071号明細書およびドイツ特許第1951696.8号および第19511697.6号およびこれに引用される文献を参照)、この場合に炭化水素の存在下で還元した顔料は一般に炭素を含有する。

【0024】本発明の光沢顔料中の基体粒子の大きさはそれ自体重要でなく、個々の適用に適合することができる。一般に、板片状の粒子は平均最大直径約1~200μm、特に約5~100μmおよび厚さ約0.1~1μm、特に約0.3μmを有する。その比自由表面積(BET)は一般に1~1.5m<sup>2</sup>/gの範囲内、特に1~1.2m<sup>2</sup>/gの範囲内である。

【0025】本発明の光沢顔料は、選択的に吸収するかまたは非選択的に吸収でき、どの場合も可視光線に対して少なくとも一部分透明である反射性の被膜(B)と組み合わせた無色の、低い屈折率の被膜(A)を有する。前記顔料は複数の同じかまたは異なる(A)+(B)の組み合わせ(層パケット)を含有してもよいが、1つの層パケット(A)+(B)のみを有する被膜が有利である。更に下に存在する層(B)を保護するために外側の層(C)を施してもよい。

【0026】低い屈折率の被膜(A)は一般に1.8以下、有利には1.6以下の屈折率nを有する。

【0027】基体粒子に硬化可能の被膜として施すことができる低い屈折率の、無色の物質が層物質(A)として使用するのに適している。

【0028】フッ化マグネシウムおよびリン酸アルミニウムのほかの特に適した例は、特に金属酸化物、例えば酸化珪素、酸化珪素水和物、酸化アルミニウム、酸化アルミニウム水和物およびこれらの混合物であり、酸化珪素（水和物）が有利である。

【0029】被膜（A）の厚さは一般に20～800nm、有利には50～600nmである。層（A）は本発明の顔料の干渉色を実質的に決定するので、該層は1つの層パケット（A）+（B）のみを有し、特に顕著な色の動きを示し、従って有利である光沢顔料中で約100nmの最低厚さを有する。複数の（例えば2,3または4個の）層パケット（A）+（B）が存在する場合は、（A）の厚さは有利には50～300nmの範囲内である。

【0030】反射性の被膜（B）に関して適当な物質は高い屈折率の選択的または非選択的に吸収する物質だけでなく高い吸収定数を有する低い屈折率の非選択的に吸収する物質が含まれ、これはもちろん硬化可能の被膜として析出可能でなければならない。

【0031】被膜（B）として適当な高い屈折率の物質の例は非選択的に吸収する物質、例えば金属、金属酸化物、金属硫化物およびこれらの混合物であり、これらは少量で選択的に吸収する金属酸化物および選択的に吸収する物質、例えば特に金属酸化物を含有してもよく、それぞれ一般に2.0以上、有利にはn2.4以上の屈折率nを有する。

【0032】被膜（B）に適した非選択的に吸収する高い屈折率の物質の具体的な例は以下のものである。

【0033】揮発性金属化合物の気相分解により塗布することができる金属、例えば特に有利にはモリブデン、有利には鉄、タンゲステンおよびクロム、コバルトおよびニッケル、およびこれらの混合物、金属塩溶液の還元により湿式化学的に析出することができる金属、例えば銀、銅、金、パラジウムおよび白金、コバルトおよびニッケルおよび合金、例えばNiP、NiB、NiCo、NiWP、CoPおよびAgAu。

【0034】金属酸化物、有利には磁鉄鉱 $Fe_3O_4$ 、酸化コバルト（ $CoO$ 、 $Co_3O_4$ ）および酸化バナジウム（ $VO_2$ 、 $V_2O_3$ ）およびこれらの酸化物と金属の混合物、例えば特に磁鉄鉱および鉄との混合物。

【0035】金属硫化物、特に有利には硫化モリブデン、有利には硫化鉄、硫化タンゲステンおよび硫化クロム、硫化コバルトおよび硫化ニッケルおよびこれらの硫化物の混合物、例えば $MoS_2/Ws_2$ および特にこれらの硫化物とそれとの金属との混合物、例えば特に $MoS_2$ およびモリブデンの混合物、およびそれとの金属の酸化物との混合物、例えば $MoS_2$ および酸化モリブデンの混合物。

【0036】例えば非選択的に吸収する（黒い）物質（例えばカーボン）を配合したまたはこれを被覆した無

色の高い屈折率の物質、例えば二酸化ジルコニウム、特に二酸化チタンの層（欧洲特許第499864号明細書）は非選択的に吸収する高い屈折率の被膜（B）として使用するために適している。

【0037】選択的に吸収する高い屈折率の層物質

（B）の例は、特に有色酸化物、例えば有利には酸化鉄（III）（ $\alpha$ -および $\gamma$ - $Fe_2O_3$ 、赤）、酸化クロム（III）（緑）、酸化チタン（III）（ $Ti_2O_3$ 、青）および五酸化バナジウム（橙）および有色窒化物、例えば有利にはオキシ窒化チタンおよび窒化チタン（ $TiO_xN_y$ 、 $TiN$ 、青）、低級酸化チタンおよび一般に二酸化チタンとの混合物で存在する窒化物である。

【0038】この場合に、金属酸化物層に着色剤を配合することにより、選択的に吸収する金属カチオンをドープすることにより、または金属酸化物層に着色剤を含有する被膜を被覆することにより、選択的に吸収する着色剤で着色した無色の高い屈折率の物質、例えば金属酸化物、例えば二酸化ジルコニウム、特に二酸化チタンを使用することはもちろん可能である（ドイツ特許出願番号P4437753号）。

【0039】最後に、被膜（B）として使用するために高い吸収定数を有する適当な低い屈折率の、非選択的に吸収する物質は特に金属、例えばアルミニウムである。

【0040】被膜（B）はもちろん不透明でないが、可視光線に対して少なくとも一部分透明（半透明）であり、従ってその厚さは選択される層物質の光学的特性の関数として異なる。

【0041】被膜（B）の層厚は、非選択的に吸収する

高い屈折率の物質、例えば金属、黒い金属酸化物および硫化物の場合は一般に1～100nmの範囲内であり、強く吸収する金属、例えばモリブデンおよびクロムの場合は有利には約1～25nmの範囲内であり、弱く吸収する物質、例えば磁鉄鉱の場合は約10～50nmの範囲内であり、金属硫化物を含有する物質、例えば $MoS_2$ を含有する層の場合は有利には5～20nmの範囲内である。

【0042】有色の高い屈折率の金属酸化物被膜（B）の場合は、層厚は一般に1～500nm、有利には10～150nmの範囲内である。

【0043】低い屈折率で強く吸収するアルミニウム層（B）は最終的には一般に厚さ1～25nmであり、有利には5～20nmである。

【0044】複数の層パケット（A）+（B）が存在する場合は、被膜（B）の層厚は一般に約50～75%減少する。

【0045】高い屈折率の（半）透明の基体に低い屈折率の層（A）を被覆することにより基体の光学的特性（吸収/非吸収）により決定される一連の干渉色を示す顔料を生じる。

【0046】非吸収性（無色）の高い屈折率の基体は、適當な層厚（約40～160nm）を有する場合は本質的に干渉色を有してもよい。（A）を有する被膜により、出発物質により決定される位置に干渉列が継続し、干渉色は同時に角度に依存する。

【0047】例えば銀色のTiO<sub>2</sub>被覆した雲母板片または銀色のB<sub>2</sub>O<sub>3</sub>板片に二酸化珪素を被覆する場合は、乾燥顔料粉末の平面でSiO<sub>2</sub>層厚が増加するに伴って干渉色、青、緑、金および赤が順次認められる。平面で青を反射する顔料は角度を傾斜していくと例えば赤色を示す。

【0048】しかしながら（A）を被覆した非吸収性基体の干渉色は乾燥状態、すなわち顔料粉末中でのみ可視であり、湿った状態またはワニス中で完全に消失する。

【0049】非選択的に吸収する層（B）、例えばモリブデンを有する付加的な被膜は、干渉色をそれぞれの色調に均等に高め、ワニス中でさえも可視であるようにする。

【0050】選択的に吸収する（有色の）層（B）を塗布することにより特に干渉色が高められ、（B）の吸収色に近くなるが、干渉色の逸脱が減少する。例えば赤から金への干渉色には酸化鉄（III）が、緑の干渉色には酸化クロム（III）が、青の干渉色には還元した二酸化チタン、特にアンモニアで還元した二酸化チタンがきわめて適した選択である。

【0051】吸収する（半）透明の基体の場合は、非選択的に吸収する物質と選択的に吸収する物質とを区別しなければならない。

【0052】非選択的に吸収する基体は視覚の外側で暗くみえる。この場合に適當な基体は、例えば800°Cで水素で還元した、および還元した酸化チタンの形成によりほとんど変わらない銀光沢と結合して減少した光透過性を示す、銀色のTiO<sub>2</sub>被覆した雲母およびカーボンブラックをドープしたTiO<sub>2</sub>被覆した雲母である。

【0053】非選択的に吸収する基体は層（A）を被覆する場合は空気中で非吸収性の基体より強い干渉色を示す。

【0054】透明な基体と同様に、非選択的に吸収する基体の干渉色は層（B）を被覆するとワニス中で可視であり、選択的に吸収する層（B）を（A）を被覆した基体の干渉色に適合することができる。

【0055】選択的に吸収する（有色の）基体、例えば板片状の酸化鉄、酸化鉄（III）を被覆した雲母板片およびアンモニアで還元した（青の）TiO<sub>2</sub>被覆した雲母板片の場合に、層（A）を被覆すると基体の吸収色は生じた干渉色と混合する。

【0056】例えば（A）を被覆した赤鉄鉱板片（α-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、赤）およびFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を含有する雲母は緑がかった金から青みがかった赤の色調範囲で一連の強い角度に依存した高い光沢の干渉色を示すが、これに対して緑

および青の色調はこの範囲で吸収する基体により減少する。反対に青い還元したTiO<sub>2</sub>被覆した雲母板片は青から緑の色調範囲で特に光沢のある干渉色を生じる。

【0057】干渉色の高まりは層（B）を被覆することにより行うことができ、この場合に選択的に吸収する基体のなかで述べたように顔料の干渉色に（従って基体の吸収色に）適合することができる選択的に吸収する層（B）が有利である。

【0058】最後に本発明の光沢顔料は、特に主に金属層（B）または還元した（低い原子価の）金属酸化物を含有する層（B）を保護するために下側に更に外側の層（C）を含んでもよい。

【0059】前記層（C）は、無色だけでなく選択的に吸収性であってもよい低い屈折率または高い屈折率の金属酸化物から構成されてもよい。適當な金属酸化物の例には酸化珪素、酸化珪素水和物、酸化アルミニウム、酸化アルミニウム水和物、酸化スズ、二酸化チタン、酸化ジルコニウム、酸化鉄（III）および酸化クロム（III）が含まれ、酸化珪素および酸化アルミニウムが有利である。

【0060】層（C）は気相不動態化により得られるリン酸塩、クロム酸塩および/またはバナジン酸塩を含有する層またはほかのリン酸塩およびSiO<sub>2</sub>を含有する層（欧州特許公開第595131号明細書およびドイツ特許出願番号P4414079号）であってもよく、これは實質的に金属層（B）からなる本発明の光沢顔料を水性塗料またはほかの水性系に使用すること可能にする。

【0061】層（C）の厚さは一般に約1～400nm、有利には5～250nmである。

【0062】もちろん層（C）は同様に顔料の干渉に寄与してもよく、（A）および（B）を被覆した基体により決定される位置で干渉列を継続してもよい。これは例えば層（C）として酸化ジルコニウムまたは酸化チタンを適用する場合である。反対に層（C）が主に酸化珪素からなる場合は、この層は同様の屈折率を有する適用媒体（例えばペイントまたはインク）中で色彩的にほとんど認識できない。

【0063】最後に有色金属酸化物、例えば酸化鉄および酸化クロムはその吸収色の混合により多層系の干渉色を変性し、厚さが増加すると最後に見えなくなる。

【0064】本発明の光沢顔料はすべての面で、上側だけでなく、下側の表面で基体板片を覆うその干渉可能な被膜の均一の、一様な、かつ被膜状構造のためにすぐれている。

【0065】前記顔料は基体粒子の透明性から生じるきわめて強い、きわめて角度に依存した干渉色を示し、これは予測されなかったことである。

【0066】金属ベースの公知の強い反射性ゴニオクロマチック光沢顔料と異なり、本発明の光沢顔料は可視光

線に対して透明であり、すなわち反射および透過光中で異なる（相補的な）干渉色を有するが、その透明性にもかかわらず高い隠蔽力のためにすぐれている。

【0067】更に本発明の顔料はワニス中で金属光沢顔料に典型的なざらざらした金属光沢を示さず、外見上は観察した物体内部の深さからくる柔らかい光沢を示し、このために適用する場合に空間の深さがもつ幻想を引き起こす。

【0068】本発明の光沢顔料は有利には揮発性金属化合物の気相分解を介して（CVD）または湿式化学的に、特に有機金属化合物の加水分解を介して基体板片の多層被覆により製造する。

【0069】湿式化学およびCVD法は、酸化珪素層および／または酸化アルミニウム層（B）を製造するため等しく適している。

【0070】ドイツ特許出願番号P 4 4 0 5 4 9 2号に記載の湿式化学的変法においては、有機ラジカルが酸素原子を介して金属と結合している有機珪素および／またはアルミニウム化合物を、基体粒子および金属化合物が溶解し、水と混和可能である有機溶剤の存在下で加水分解する。

【0071】有利な実施態様はアルコール（特にイソプロパノール）および触媒として水性アンモニアの存在下での金属アルコキシド（特にテトラエトキシシランおよびアルミニウムトリイソプロポキシド）の加水分解である。

【0072】有利な方法は基体粒子、イソプロパノール、水およびアンモニアをはじめに入れ、この混合物を攪拌しながら40～80℃、特に約60～70℃に加熱し、イソプロパノール中の金属アルコキシドの溶液に連続的に配量することからなる。一般に約1～15時間の引き続き攪拌時間の後で混合物を室温に冷却し、被覆した顔料を濾過、洗浄および乾燥により単離する。

【0073】ドイツ特許出願番号P 4 4 3 7 7 5 2号に記載のCVD変法においては、少なくとも1個のアルカノイルオキシ基を有するシランを気相中で水蒸気およびシランがアルキル基またはフェニル基を有する場合は攪拌した基体粒子の存在下で酸素で分解する。

【0074】有利なシランはアルコキシ基およびアルカノイルオキシ基を有し、ジt-ブトキシジアセトキシランが特に有利である。

【0075】CVD変法を実施するために、一般にCVD法を使用する場合は、例えば欧洲特許公開第4 5 8 5 1号明細書に記載された流動床反応器を使用することが好ましい。基体粒子を反応器中で不活性ガス、例えば窒素で流動化して所望の反応温度（一般に100～600℃、有利には150～300℃）に加熱し、引き続きシランおよび水蒸気（および適当な場合は酸素）を上流の蒸発容器から分離ノズルを介して不活性担体ガス流（有利には流動ガスの部分流）を用いて、有利にはシランの

濃度を反応器中のガスの全量に対して5容量%以下、有利には2容量%以下に維持して導入する。水蒸気の量は少なくともシランの加水分解に関して化学量論的に必要な量に相当すべきであるが、この量の10～100倍の量が有利である。

【0076】層（B）は有利には所望の層物質と異なる反応条件下でCVD法により製造する。

【0077】国際特許WO-A-93/12182号明細書から公知のように、金属層（B）は、有利には不活性条件下で、70～350℃で、金属カルボニル、例えば鉄ペントカルボニル、クロムヘキサカルボニル、モリブデンヘキサカルボニル、タンゲステンヘキサカルボニル、ニッケルテトラカルボニルおよび／またはジコバルトオクタカルボニルを分解することにより塗布する。特に有利なMo(Co)は200～250℃の温度で理想的に分解する。

【0078】ドイツ特許第19516181.5号に記載されるように、アルミニウム層（B）はオルガノアルミニウム、特にアルキルアルミニウムまたは水素化アルミニウムのアルキルアミン付加物の不活性気相分解により析出することができる。

【0079】水素化モノアルキルアルミニウムおよびハロゲン化モノアルキルアルミニウムのほかに適当なアルキルアルミニウムは、有利には水素化ジアルキルアルミニウムおよびハロゲン化ジアルキルアルミニウムおよび特にトリアルキルアルミニウム、特に例えばトリエチルアルミニウムおよびトリメチルアルミニウムである。

【0080】アルミニウム層（B）は、有利にはアルキルアルミニウムを低い揮発性の炭化水素、例えば石油中の溶液の形で、被覆反応器の上流に配置され、徐々に約100～150℃に加熱した蒸発容器に装入し、アルキルアルミニウムを有利には温度制御したノズルを介してこの溶液を通過した不活性ガス流（例えばアルゴンまたは特に窒素）を用いて反応器に搬送し、反応器中で一般に100～500℃、有利には150～400℃で熱分解することにより塗布し、その際揮発性アルミニウム化合物のガス量が反応器中のガスの全量に対して一般に2容量%、有利には1容量%をこえないようにする。

【0081】有利な反応器は特に前記の流動床反応器であるが、モータにより回転し、回転軸にガス導入および排出ラインが備えられ、貝殻形炉（clamshell oven）により加熱され、全体が回転球型炉（rotary sphere furnace）になっている石英ガラス製の1口（one necked）丸底フラスコを使用することも可能である。原則的に、使用される反応器は適当な内部部品を用いて基体粒子を温和に攪拌し、ガスの供給および除去を可能にする任意の加熱可能な混合機であってもよい。工業的規模の連続的な工程のためには、例えば基体粒子およびアルキルアルミニウム／不活性ガス混合物を連続的に供給する回転管型炉を使用することも可能である。

【0082】最後に金属層（B）を適当な金属塩溶液を還元することにより湿式化学的に塗布することもできる。この方法で特に貴金属、例えば特に銀、および銅、金、コバルト、ニッケル、パラジウムおよび白金を析出することが可能である。欧洲特許第353544号明細書に記載されたように、若干の還元剤がこの目的に適しており、特に温和な有機還元剤、例えば糖、例えばグルコースおよびデキストロース、およびホルムアルデヒドが適している。

【0083】しかしながら一般には気相から塗布した金属層がその高い品質（微細結晶、薄膜状）のために湿式化学的に塗布した層より好ましく、それというのも一般により輝いた、強い光沢顔料を生じるからである。

【0084】主に低級金属酸化物（例えば $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、 $\text{VO}_2$ 、 $\text{V}_2\text{O}_3$ ）からなる非選択的に吸収する層（B）のCVD析出は同様に国際特許WO-A-93/12182号明細書から公知である。ここで金属カルボニル、例えば鉄ペンタカルボニルまたはオキシクロリド、例えばオキシ塩化バナジウムを水蒸気で分解する。気相分解が高級金属酸化物、例えば $\text{V}_2\text{O}_5$ をはじめに生じる場合は、これを引き続き例えば水素またはアンモニアで所望の酸化物に還元しなければならない。

【0085】欧洲特許公開第579091号明細書およびドイツ特許第19515988.8号に記載されるように、有利には不活性ガスまたは酸素および/または水蒸気の存在下で揮発性の金属化合物の気相分解によりはじめに金属層または金属酸化物層を析出し、引き続きこの金属層または金属酸化物層を揮発性の硫黄含有化合物または硫黄蒸気と反応させることにより所望の金属一硫化物含有層（B）に転化するかまたは硫黄含有雰囲気中で揮発性の金属化合物の気相分解により直接層（B）を析出することにより、非選択的に吸収する金属一硫化物含有層（B）を（A）を被覆した基体粒子に塗布することができる。

【0086】欧洲特許第579091号明細書に記載される硫黄含有有機化合物と同様に、有利な硫黄供与体には特に硫化水素および硫黄自体が含まれる。

【0087】元素の硫黄を使用する場合は、有利な方法は、微細に粉碎した硫黄粉末を基体物質とともに反応器に入れ、1~4時間不活性化し、引き続き酸素の存在下で反応温度（一般に200~500°C、有利には300~500°C、特に有利には400~450°C）に加熱することからなる。

【0088】適当な反応器にはアルミニウムを被覆するための前記の反応器が含まれる。

【0089】存在する残りの硫黄は不活性ガス流中で昇華により容易に除去する。しかしながら一般にはこれは必要でない、それというのも硫黄は定量的に（金属硫化物を形成するために化学量論的に必要な量まで）反応し、従って層（B）に所望される硫化物含量に相当する

量で容易に添加できるからである。更に不動態化を必要としない連続した密な硫化物層により有利な金属またはほかの酸化物出発層が少なくとも覆われるほど十分な硫黄を使用することが有利である。（基体の近くの）内部の層（B）の領域は実質的に硫化物不含であってもよく、主にそれぞれの金属または金属酸化物のみからなる。

【0090】同様に主に有色の金属酸化物および/または金属窒化物からなる選択的に吸収する層（B）はすでに記載された特別のCVD法を使用して適当に製造可能である。

【0091】例えば鉄ペンタカルボニルおよびクロムヘキサカルボニルを酸化分解するかまたはチタンテトライソプロポキシドまたは四塩化チタンを加水分解し、引き続き生じた二酸化チタンを、オキシ窒化チタンおよび窒化チタン（および可能な場合は炭素）との混合物中に $\text{Ti}_2\text{O}_3$ （ $\text{TiO}_2$ のほかに）が存在する時点で水素またはアンモニアおよびアンモニアープロパン混合物で還元することにより、 $\alpha$ -酸化鉄（III）、酸化クロム（III）および酸化チタン（III）を析出することは周知である（欧洲特許公開第33457号明細書、欧洲特許第338428号明細書、ドイツ特許第19511696.8号および第19511697.6号）。

【0092】湿式化学的に鉄（III）塩、例えば塩化鉄（III）および硫酸鉄（III）および塩化クロム（III）を加水分解し、引き続き生じた水酸化物含有層を熱処理により酸化物層に転化することにより $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 層および $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 層を塗布することができる。同様に $\text{TiCl}_4$ を加水分解し、引き続き生じた $\text{TiO}_2$ を水素またはアンモニアで還元することにより $\text{Ti}_2\text{O}_3$ 被膜を得ることができる。

【0093】選択的に吸収する $\gamma$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ （B）の被覆は、ドイツ特許出願公開第4340141号明細書に記載のCVD法の変法により、最初に水蒸気の存在下で $\text{Fe}(\text{CO})_5$ を分解して磁鉄鉱被膜を析出し、これを引き続き空気で酸化して $\gamma$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ を生じるかまたは最初に $\text{Fe}(\text{CO})_5$ を酸化分解し、 $\alpha$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ 被膜を析出し、これを引き続き水素で還元して鉄（II）含有生成物を生じ、引き続き空気で酸化して $\gamma$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ を生じることにより実施することができる。

【0094】オキシ塩化バナジウムを水蒸気で気相分解することにより酸化（V）バナジウム層（B）を最終的に析出することができる。

【0095】着色剤を添加した $\text{TiO}_2$ 層（B）を製造するためにドイツ特許出願番号P4437753号が有利である。

【0096】主に無色または選択的に吸収する金属酸化物からなる外側の保護層（C）はすでに記載された方法により、金属カルボニルまたは金属アルコキシドの気相酸化分解または気相加水分解によりまたは湿式化学的に

有機金属化合物（珪素、アルミニウム）または無機金属塩の加水分解により製造することができる。

【0097】リン酸塩、クロム酸塩および／またはバナジン酸塩含有およびリン酸塩および $\text{SiO}_2$ 含有外側層（C）を欧州特許第595131号明細書およびドイツ特許出願番号P.4414079号に記載された不動態化法により、金属のハロゲン化酸化物（例えば $\text{CrO}_2\text{Cl}_2$ ,  $\text{VOCl}_3$ ）、特にオキシハロゲン化リン（例えば $\text{POCl}_3$ ）、亜リン酸およびリン酸エステル（例えばジーおよびトリメチルおよびーエチルホスフィット）およびアミノ含有オルガノ珪素（例えば3-アミノプロピルトリエトキシおよびートリメトキシシラン）の気相加水分解または気相酸化分解により塗布することができる。

【0098】水性系中で特に安定な光沢顔料はリン化合物および珪素化合物を組み合わせた分解から得られる。

【0099】本発明の光沢顔料は多くの目的、例えばラスチック、ガラス、セラミック製品、装飾化粧品調製物および特に被膜、特に自動車被膜、およびインク、特に有価証券印刷インクの着色に有利に使用することができる。すべての通常の印刷法、例えばスクリーン印刷、凹版印刷、金粉印刷、フレキソグラフ印刷およびオフセット印刷を使用することができる。

【0100】本発明の顔料はこれらの目的に、透明および隠蔽する白色、有色および黒色の顔料および金属一酸化物を被覆した雲母および金属顔料をベースとする常用の透明、有色および黒色の光沢顔料、板片状酸化鉄、グラファイト、硫化モリブデンおよび板片状有機顔料との混合物で有利に使用することができる。

#### 【0101】

##### 【実施例】

###### 例

本発明による光沢顔料の製造および適用

顔料を塗料に配合するために、それぞれの顔料0.4gを固体含量21重量%を有する混合したポリエステルワニス3.6g中に攪拌し、混合物をレッドデビル（Red Devil）中で2分間分散させた。顔料着色したワニスの塗膜を黒および白のボール紙に $160\text{ }\mu\text{m}$ の湿った被膜厚さでナイフ塗布した。

##### 【0102】例1

銀色の $\text{TiO}_2$ 被覆した雲母顔料（Iridin 103 Rutile Sterling Silver, Merck）100gを回転球形炉中で窒素毎時50lを1時間通過することにより不活性化した。600℃に加熱後水素毎時20lを2時間導入した。還元が終了すると新たに窒素をフラッシュして内容物を室温に冷却した。

【0103】還元後最初の白色の顔料は銀の体質色を示し、すぐれた隠蔽力を示した。

【0104】還流凝縮器および攪拌器を装備した丸底フラスコ中で、還元した雲母顔料をイソプロパノール80

0ml中で懸濁させた。水300mlおよび濃度2.5重量%アンモニア水溶液30mlを添加後、懸濁液をはげしく攪拌しながら60℃に加熱した。同時にイソプロパノール200mlおよびテトラエトキシシラン400gの配量した添加（毎時100mlの速度で6時間）を開始した。引き続き2時間攪拌し、懸濁液を冷却した後で生成物を濾過し、イソプロパノールで完全に洗浄し、80℃で乾燥した。

【0105】乾燥した $\text{SiO}_2$ 被覆した顔料は空气中で平面で見て淡い青の干渉色を示し、角度を傾斜していくと淡い赤に変化した。

【0106】引き続き $\text{SiO}_2$ 被覆した雲母顔料210gを毎時600lの全部の窒素で流動化しながら流動床反応器中で220℃に加熱した。60℃の熱い逆向きの容器からモリブデンヘキサカルボニル32.3gを附加的に8時間かけて窒素流毎時400lにより反応器に搬送し、ここでモリブデンと一酸化炭素に分解した。モリブデンの分解が終了すると、モリブデン表面を不動態化するために冷却している間に流動化ガスを空気と混合した。

【0107】ワニス中でモリブデンを被覆した顔料は平面で見ると強い緑がかった青の干渉色を示し、角度を傾斜していくと純粹の青をへて紫に変化した。

【0108】引き続き $\text{Mo}$ 被覆した顔料100gを微細に粉碎した硫黄粉末2.5gと混合し、最初に毎時30lの窒素を1時間使用して回転球形炉中で不活性化し、引き続き約30分かけて毎時5lの窒素流下で500℃に加熱した。2時間後窒素下で内容物を室温に冷却した。

【0109】得られた顔料はチタン含量7.5重量%、珪素含量30.5重量%、モリブデン含量3.6重量%および硫黄含量0.96重量%を有した。塗布した際に顔料は平面で見ると強い青みがかった緑の干渉色を示し、角度を傾斜していくと紫をへて赤に変化した。

##### 【0110】例2

例1を繰り返した、ただし銀色の $\text{TiO}_2$ 被覆した雲母顔料100gを800℃で水素で還元した。

【0111】還元後顔料は同様に銀の体質色を示し、例1の顔料に比べて向上した隠蔽力を示した。

【0112】還元した顔料100gを、例1と同様にしてイソプロパノール100ml中で懸濁させ、はじめに水400mlおよび濃度2.5重量%アンモニア水溶液40mlと混合し、引き続きイソプロパノール300mlおよびテトラエトキシシラン600gの混合物と9時間にわたって混合することにより $\text{SiO}_2$ を被覆した。引き続く攪拌時間は14時間であった。

【0113】乾燥した $\text{SiO}_2$ 被覆した顔料（268g）は空气中で平面で見て青みがかった紫のゆらめきを示し、角度を傾斜していくと赤のゆらめきに変わった。

【0114】引き続き $\text{SiO}_2$ 被覆した顔料185gに

$\text{Mo}(\text{CO})_6$  27.5 g を使用して6時間かけて例1と同様にしてモリブデンを被覆した。

【0115】ワニス中で  $\text{Mo}$  被覆した顔料は平面で見ると強い青の干渉色を示し、角度を傾斜していくと紫に変化した。

【0116】引き続き  $\text{Mo}$  被覆した顔料 100 g を例1と同様に硫黄粉末 4.5 g と反応させた。

【0117】得られた顔料はチタン含量 6.0 重量%、珪素含量 3.1 重量%、モリブデン含量 3.3 重量% および硫黄含量 1.7 重量% を有した。塗布した際に顔料は平面で見ると強い赤みがかった青の干渉色を示し、角度を傾斜していくと赤をへて金色に変化した。

【0118】例3

銀色の  $\text{TiO}_2$  被覆した雲母顔料 150 g を例1と同様にしてイソプロパノール 150 ml 中で懸濁させ、はじめに水 500 ml および濃度 2.5 重量% アンモニア水溶液 50 ml と混合し、引き続きイソプロパノール 375 ml およびテトラエトキシシラン 750 g の混合物と 7 時間にわたって混合する（添加速度毎時 160 ml）ことにより、 $\text{SiO}_2$  を被覆した。引き続く攪拌時間は 1 時間であった。

【0119】乾燥した  $\text{SiO}_2$  被覆した顔料（352 g）はその白い体质色を維持し、空气中で黒い背景に対してのみ角度を傾斜していくと淡い赤の干渉色を示した。

【0120】引き続き  $\text{SiO}_2$  被覆した顔料 310 g に例1と同様にして  $\text{Mo}(\text{CO})_6$  49.8 g を使用して 1.5 時間かけてモリブデンを被覆した。

【0121】ワニス中で  $\text{Mo}$  被覆した顔料は平面で見ると強い、赤の干渉色を示し、角度を傾斜していくと赤みがかった金をへて緑がかった金に変化した。

【0122】引き続き  $\text{Mo}$  被覆した顔料 100 g を例1と同様に硫黄粉末と反応させた。

【0123】得られた顔料はチタン含量 8.4 重量%、珪素含量 27.4 重量%、モリブデン含量 4.6 重量% および硫黄含量 1.2 重量% を有した。塗布した際に顔料は平面で見ると強い青みがかった赤の干渉色を示し、角度を傾斜していくと赤をへて金色に変化した。

【0124】例4

青みがかった銀色の、アンモニアで還元し、 $\text{TiO}_2$  被覆した雲母顔料 (Paliocrom(R), Blue Silver L 6000, BASF) 150 g を例1と同様にして、イソプロパノール 1500 ml 中で懸濁させ、はじめに水 500 ml および濃度 2.5 重量% アンモニア水溶液 50 ml と混合し、引き続きイソプロパノール 300 ml およびテトラエトキシシラン 600 g の混合物と 7 時間かけて混合することにより  $\text{SiO}_2$  を被覆した。引き続く攪拌時間は 1.4 時間であった。

【0125】乾燥した  $\text{SiO}_2$  被覆した顔料（312

g）は空气中で平面で見ると強い青の干渉色を示し、角度を傾斜していくと紫に変化した。

【0126】引き続き  $\text{SiO}_2$  被覆した顔料 300 g に例1と同様にして  $\text{Mo}(\text{CO})_6$  30 g を使用して 7 時間にわたってモリブデンを被覆した。

【0127】得られた顔料はチタン含量 7.7 重量%、珪素含量 29.6 重量% およびモリブデン含量 2.6 重量% を有した。塗布した際に顔料は平面で見ると強い青の干渉色を示し、角度を傾斜していくと紫に変化した。

10 【0128】例5

例2の  $\text{SiO}_2$  被覆した顔料 2 g を水 100 ml 中で懸濁させた。デキストロース 1 g の添加に続いて濃度 2 重量% アンモニアで懸濁液の pH 値を 9 に調整した。水 50 ml 中の硝酸銀 0.2 g 溶液の添加に続いて懸濁液を 40 °C に加熱し、この温度で 2 時間、更に室温で 1.5 時間攪拌した。生成物を濾過し、最初に水で、引き続きアセトンで洗浄し、室温で乾燥した。

【0129】得られた顔料はチタン含量 7.4 重量%、珪素含量 34.4 重量% および銀含量 6.6 重量% を有した。

20 【0130】例6

塗布した際に顔料はワニス中で平面で見ると灰色がかった青色を示し、角度を傾斜していくと赤をへて緑に変化した。

【0130】例6

銅色の、アルミニウムおよびマンガンをドープした板片状  $\alpha$ -酸化鉄 (III) 顔料（アルミニウム 2.2 重量%、マンガン 0.3 重量%、それぞれ顔料全体に関する、平均粒子直径 18  $\mu\text{m}$ 、欧州特許公開第 265280 号明細書の例1と同様に製造した、ただしオートクレーブ 3.5 l 中でバッチ 10 回で製造した）150 g を例1と同様に、イソプロパノール 1200 ml 中で懸濁させ、はじめに水 500 ml および濃度 2.5 重量% アンモニア 50 ml と混合し、引き続きテトラエトキシシラン 500 g と 5 時間にわたって混合することにより  $\text{SiO}_2$  を被覆した。引き続く攪拌時間は 2 時間であった。

30 【0131】乾燥した  $\text{SiO}_2$  被覆した顔料（280 g）は空气中で平面で見ると赤の干渉色を示し、角度を傾斜していくと緑がかった金に変化した。

【0132】引き続き  $\text{SiO}_2$  被覆した顔料 120 g を

40 流動床反応器中で窒素毎時 400 l で流動化して 190 °C に加熱した。更に水蒸気を負荷した窒素毎時 300 l を 40 °C に温度制御した水貯蔵器を通過することによりおよび空気毎時 200 l を側面の 2 個の別のノズルを介して導入した。室温貯蔵器から鉄ペンタカルボニル 120 g を窒素更に毎時 300 l を用いて 1.2 時間で反応器に搬送し、ここで  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  に分解した。

【0133】得られた顔料は珪素含量 18.4 重量% および全鉄含量 37.5 重量% を有した。塗布した際に顔料は平面で見ると緑がかった干渉色を示し、角度を傾斜していくと青をへて赤に変化した。

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】平成15年7月3日(2003.7.3)

【公開番号】特開平9-31355

【公開日】平成9年2月4日(1997.2.4)

【年通号数】公開特許公報9-314

【出願番号】特願平8-180986

【国際特許分類第7版】

C09C	1/28	PAP
	1/24	PAM
	3/06	PBT

【F I】

C09C	1/28	PAP
	1/24	PAM
	3/06	PBT

【手続補正書】

【提出日】平成15年4月1日(2003.4.1)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】少なくとも一部分可視光線を透過する、多層被覆した、高い屈折率の、非金属板片状基体をベースとするゴニオクロマチック光沢顔料において、前記顔料が

A) 1.8以下の屈折率nを有する無色の被膜および  
B) 少なくとも一部分可視光線を透過する反射性の、選択的または非選択的に吸収する被膜および場合により更に

C) 外側の保護層

からなる少なくとも1つの層パケットから構成されることを特徴とする、ゴニオクロマチック光沢顔料。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0001

【補正方法】変更

【補正内容】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、

A) 1.8以下の屈折率nを有する無色の被膜および  
B) 少なくとも一部分可視光線を透過する反射性の、選択的または非選択的に吸収する被膜および場合により更に

C) 外側の保護層

からなる少なくとも1つの層パケットから構成される、少なくとも一部分可視光線を透過する、多層被覆した、

高い屈折率の、非金属板片状基体をベースとする新規のゴニオクロマチック(goniochromatic)光沢顔料、ならびにペイント、印刷インクを含むインク、プラスチック、ガラス、セラミック製品および装飾化粧品調製物を着色するためのその使用に関する。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0016

【補正方法】変更

【補正内容】

【0016】本発明の目的に関して、“少なくとも一部分可視光線を透過する”とは、基体が一般に入射光を少なくとも10%、有利には少なくとも30%透過することである。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0025

【補正方法】変更

【補正内容】

【0025】本発明の光沢顔料は、選択的に吸収するかまたは非選択的に吸収でき、どの場合も可視光線を少なくとも一部分透過する反射性の被膜(B)と組み合わせた無色の、低い屈折率の被膜(A)を有する。前記顔料は複数の同じかまたは異なる(A)+(B)の組み合わせ(層パケット)を含有してもよいが、1つの層パケット(A)+(B)のみを有する被膜が有利である。更に下に存在する層(B)を保護するために外側の層(C)を施してもよい。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0040

【補正方法】変更

【補正内容】

【0040】被膜（B）はもちろん不透明でないが、可視光線を少なくとも一部分透過し（半透性）、従ってその厚さは選択される層物質の光学的特性の関数として異なる。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0066

【補正方法】変更

【補正内容】

【0066】金属ベースの公知の強い反射性ゴニオクロマチック光沢顔料と異なり、本発明の光沢顔料は可視光線を透過し、すなわち反射および透過光中で異なる（相補的な）干渉色を有するが、その透過性にもかかわらず高い隠蔽力のためにすぐれている。